

BEST AVAILABLE COPY

Electrochemical cell electrode structure - with flow passages for electrolyte and for process gas

Patent Assignee: ENERGY RES CORP (ENER-N)

Inventor: BAKER B S; DHARIA D J

Number of Countries: 004 Number of Patents: 006

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
US 4169917	A	19791002				197941 B
GB 2025120	A	19800116				198003
DE 2927682	A	19800124				198005
FR 2431194	A	19800314				198017
GB 2025120	B	19821215				198250
DE 2927682	C	19830428				198318

Priority Applications (No Type Date): US 78923369 A 19780710

Abstract (Basic): US 4169917 A

Electrochemical cell has an electrolyte, an electrode contiguous with the electrolyte and a plate structure defining a set of flow passages in a flow communication with the electrolyte; and a second set of flow passages in flow isolation relative the electrolyte, the second set of passages being bounded by a surface contiguous with the electrode. Used in a fuel cell in which reactant or prod. gas is conducted to or from the cells. Second set of passages are used for conveying process gas which might contaminate electrolyte if it was allowed to contact the electrode. The construction successfully isolates the gas in those channels from the electrode and electrolyte. The passages are formed by corrugated sheet.

Title Terms: ELECTROCHEMICAL; CELL; ELECTRODE; STRUCTURE; FLOW; PASSAGE; ELECTROLYTIC; PROCESS; GAS

Derwent Class: L03; X16; X25

International Patent Class (Additional): C25B-009/00; H01M-002/00; H01M-008/04; H01M-010/50

File Segment: CPI; EPI

Manual Codes (CPI/A-N): L03-E04

THIS PAGE BLANK (USPTO)

⑩ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ Patentschrift
⑪ DE 2927682 C2

⑤① Int. Cl. 3:
H01M 8/24
H 01 M 8/04
H 01 M 10/50
C 25 B 9/00

⑦① Aktenzeichen:
⑦② Anmeldetag:
⑦③ Offenlegungstag:
⑦④ Veröffentlichungstag:

P 29 27 682.2-45
9. 7. 79
24. 1. 80
28. 4. 83

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

③① Unionspriorität: ③② ③③ ③④
10.07.78 US 923369

⑦⑤ Patentinhaber:
Energy Research Corp., Danbury, Conn., US

⑦⑥ Vertreter:
Abitz, W., Dipl.-Ing.Dr.-Ing.; Morf, D., Dr.; Gritschneder,
M., Dipl.-Phys., Pat.-Anw., 8000 München

⑦⑦ Erfinder:
Baker, Bernard S., Brookfield Center, Conn., US; Dharia,
Dilip J., Danbury, Conn., US

⑦⑧ Entgegenhaltungen:
DE-A S 12 93 271

⑤④ Elektrochemische Brennstoffzelle

DE 2927682 C2

BEST AVAILABLE COPY

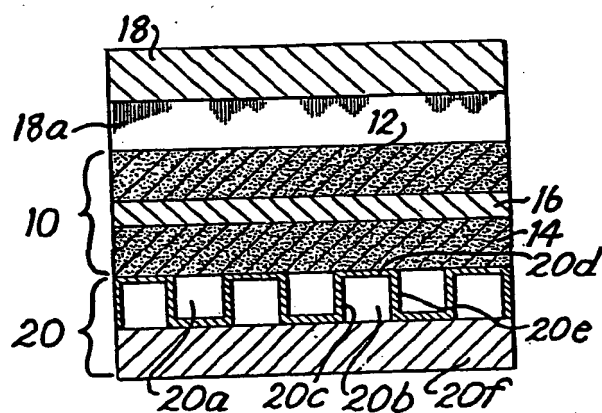


FIG. 1

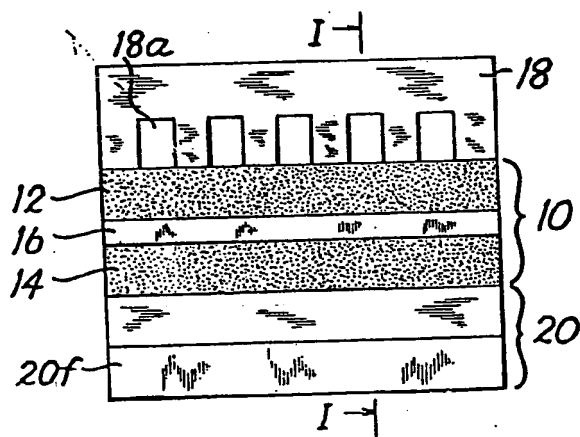


FIG. 2

Patentansprüche:

1. Elektrochemische Brennstoffzelle mit einem Elektrolyten, den Elektrolyten berührende Elektroden und einer Trennplatte, die erste mit dem Elektrolyten und einer der Elektroden in Verbindung stehende Strömungswege aufweist, dadurch gekennzeichnet,

daß die Trennplatte (20; 24; 30) ein gewelltes dünnes Blechteil (26; 34) aufweist, das die ersten, zur Elektrode (14) hin offene Strömungswege begrenzt, und alternierend zu den ersten Strömungswegen (20a; 26a; 34a) zweite Strömungswege (20b; 26b 34b) für die Aufnahme des Verfahrensgases, das der Wärmeregulierung dient, bildet und einen die zweite Strömungswege gegen die Elektrode (14) abgrenzenden vorstehenden Bereich (20d) aufweist und daß die Trennplatte (20; 24; 30) eine Platte (20f; 28; 32) enthält, die die vorstehenden, die ersten Strömungswege abgrenzenden Bereiche des Blechteils (26; 34) berührt und die zweiten Strömungswege abschließt.

2. Brennstoffzelle nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß diejenige Oberfläche der Platte (28), die der die ersten Strömungswege verschließenden Seite gegenüberliegt, Strömungswege (28a) für das Betriebsgas der nächsten Brennstoffzelle aufweist.

3. Brennstoffzelle nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch ein weiteres gewelltes, dünnes Blechteil (36), das an der ebenen Seite der Platte (32) angrenzt und Strömungswege (36a) für das Betriebsgas der nächsten Brennstoffzelle bildet.

4. Brennstoffzelle nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Strömungswege (28a) der Platte (28) kreuzweise zu den ersten (26a) und zweiten (26b) Strömungswegen angeordnet sind.

5. Brennstoffzelle nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Strömungswege (36a, 36b), die durch das weitere Blechteil (36) gebildet werden, kreuzweise zu den ersten (34a) und zweiten (34b) Strömungswegen verlaufen.

Die Erfindung betrifft eine elektrochemische Brennstoffzelle nach dem Oberbegriff des Patentanspruchs 1.

Bei der Konstruktion von Brennstoffzellen und ähnlichen Vorrichtungen zur Erzeugung elektrischer Energie, bei deren Betrieb ein elektrochemischer Reaktion unterliegendes Reaktanten- oder Produktgas (Verfahrensgas) eine Rolle spielt, hat die Wärmeregulierung eine herausragende Bedeutung. Die elektrochemischen Reaktionen in solchen Vorrichtungen sind aufgrund von die Umsetzung begleitenden Entropieänderungen und irreversiblen Vorgängen, welche durch Diffusions- und Aktivierungsüberpotentiale sowie ohmsche Widerstände verursacht werden, zwangsläufig mit einer Wärmeentwicklung oder Wärmefreisetzung verbunden. Es wurden bereits mehrere Methoden zur Erzielung einer angemessenen Wärmeregulierung erprobt, von denen sich jedoch keine als völlig zufriedenstellend erwiesen hat.

Die Wärmeregulierungstechnik macht sich am zweckmäßigsten die Eigenwärme des Verfahrensgases selbst als Medium für die thermische Kontrolle zu Nutze. Wenn eine Wärmeabfuhr von der Zelle erwünscht ist,

kann man somit das zuströmende Verfahrensgas in die Zelle bei einer niedrigeren Temperatur als der Zellenbetriebstemperatur einspeisen, so daß das ausströmende Gas Wärme, einfach durch Erhöhung seiner Temperatur während des Durchgangs durch die Zelle abführt. Bei dieser Methode stellt man die Verfahrensgas-Strömungsmenge auf einen Wert oberhalb jener Strömungsmenge ein, welche zur Erzeugung eines vorgewählten Ausmaßes an elektrischer Energie benötigt wird; das zusätzliche Verfahrensgas erfüllt dabei die wärmeabführende Funktion. Zu Nachteilen dieser Arbeitsweise gehören unerwünschte Druckabfälle aufgrund des verstärkten Verfahrensgasstromes, zusätzlicher Energieaufwand und Elektrolytverluste durch Verdampfung oder Verschleppung. Unter »zusätzlicher Energie« (Hilfsenergie) sind die Energieanforderungen der Zusatzeinrichtungen zur eigentlichen Brennstoffzelle, z. B. der Gaspumpen oder Druckerzeugungssysteme, zu verstehen. Was die Elektrolytverluste betrifft, steht das gesamte Verfahrensgas bei dieser auf der Gaseigenwärme beruhenden Methode bei seinem Durchgang durch die Zelle in Verbindung mit dem Zellelektrolyt, und wenn eine beträchtliche Menge an zusätzlichem Gas für die Wärmeregulierung benötigt wird, ist im Elektrolytgas ein sehr hoher Elektrolytverlust aufgrund der Sättigung des Gases mit Elektrolytdampf festzustellen; auf diese Weise ergibt sich eine recht hohe Elektrolyteinbuße.

Bei einer zweiten bekannten Wärmeregelmethode wird versucht, das Temperaturgefälle in Brennstoffzellen durch Anwendung einer bipolaren Platte, welche eine ausgedehnte, außerhalb der Zelle selbst angeordnete Rippe oder dergl. aufweist, zu begrenzen; vgl. die US-PS 36 23 913. Obwohl diese Methode für eine etwas gleichmäßigere Zelltemperatur sorgt, kann ein direkt durch die Zelle verlaufender starker Gasstrom zu einem hohen Elektrolytverlust und erhöhtem Hilfsenergiebedarf führen.

Eine dritte Wärmeregelmethode beruht auf der Eigenwärme einer dielektrischen Flüssigkeit. Diese Methode erfordert eine wesentlich geringere Hilfsenergie als die ein gasförmiges Wärmeübertragungsmedium anwendende Technik, benötigt jedoch einen gesonderten Wärmeübertragungskreislauf und ein elektrisch isoliertes Leitungssystem. Um Nebenschlußströme zwischen übereinandergestapelten Zellen zu vermeiden, wurden als Hitzeübertragungsmedien gemäß herkömmlicher Praxis dielektrische Flüssigkeiten, wie Fluorkohlenstoff- oder Silikonöle, verwendet. Da das Katalysatormaterial selbst durch Spurenanteile dieser dielektrischen Fluide stark vergiftet werden kann, können geringfügige Austritte aus dem Wärmeübertragungskreislauf verhängnisvolle Auswirkungen auf die Zelle haben. Dielektrische Flüssigkeiten sind ferner entflammbar und bilden toxische Reaktionsprodukte. Eine derartige Brennstoffzelle ist aus der DE-PS 12 93 271 bekannt, von der im Oberbegriff des Patentanspruchs 1 ausgegangen wird.

Eine vierte bekannte Methode zur Wärmeregulierung beruht auf der latenten Wärme von Flüssigkeiten. Flüssigkeiten mit latenter Wärme (vgl. die US-PS 37 61 316 und 39 69 145) können eine Wärmeübertragung bei nahezu gleichmäßiger Temperatur bewerkstelligen, obwohl bestimmte Temperaturgradienten in der Stapelrichtung auftreten können, wenn die Wärmeübertragungsplatte zwischen einer Gruppe von Zellen angeordnet ist. Es wird von einem extrem geringen Hilfsenergiebedarf ausgegangen. Geeignete dielektri-

sche Flüssigkeiten mit Siedepunkten im Bereich der Zellbetriebstemperatur können verwendet werden; es muß jedoch auch in diesem Falle mit den Nachteilen gerechnet werden, die bei der Methode auftreten, welche auf der Eigenwärme einer Flüssigkeit beruht. Um diese Mängel zu überwinden, kann man nicht-dielektrische Medien, wie Wasser, einsetzen. Bei Verwendung von Wasser kann Dampf mit geeigneter Qualität zur Verwendung in anderen Teilen der Anlage erzeugt werden. Ein äußerer Wärmeaustausch wird aufgrund der hohen Wärmeübertragungskoeffizienten ebenfalls als wirksam angesehen. Bei Verwendung einer nicht-dielektrischen Flüssigkeit sind jedoch aufwendige Korrosionsschutzmaßnahmen (US-PS 39 69 145, 39 23 546 und 39 40 285) und/oder die Verwendung einer Flüssigkeit mit extrem geringer Leitfähigkeit erforderlich. Während des Betriebs kann die Leitfähigkeit ansteigen, so daß außerdem Maßnahmen zur Wiederherstellung der geringen Leitfähigkeit notwendig werden können. Wenn der Kühlkreislauf unter Druck steht, sind gute Dichtungen erforderlich. Wenn sich aufgrund von durch Korrosion oder Zerstörung von Dichtungen hervorgerufenen Nadellöchern während der Einsatzzeit des Stapels ein Leck bildet, kann dieses das gesamte System außer Betrieb setzen. Aufgrund der Korrosionsschutzanforderungen und des komplizierten Leitungssystems können die Kosten des auf Basis eines dielektrischen Kühlmittels arbeitenden Wärmeübertragungs-Nebensystems beträchtliche Ausmaße annehmen.

Die DE-OS 29 27 656 beschreibt eine grundsätzliche verschiedene Methode zur Wärmeregulierung von Brennstoffzellen, bei welcher für eine Ergänzung des Stromes des Verfahrensgases durch eine elektrochemische Zelle gesorgt wird, und zwar in einem für die Wärmeregulierung durch die Eigenwärme des Verfahrensgases erforderlichen Ausmaß und in einer Weise, daß sowohl ein Elektrolytverlust als auch eine Erhöhung des Druckabfalls über die Zelle vermieden werden. Im Rahmen dieser auf der Eigenwärme des Verfahrensgases beruhenden Methode sieht die der vorgenannten Patentanmeldung zugrunde liegende Erfindung zusätzlich zu dem üblichen, mit dem Zellelektrolyt in Verbindung stehenden Verfahrensgasdurchgang einen weiteren Verfahrensgasdurchgang in der Zelle vor, welcher vom Zellelektrolyt isoliert ist und mit einer hitzeerzeugenden Oberfläche der Zelle in thermischer Verbindung steht. Der mit dem Elektrolyt in Verbindung stehende Durchgang und der vom Elektrolyt isolierte Durchgang sind gemeinsam über ein Leitungssystem an eine Druckzufuhreinrichtung für das Verfahrensgas angeschlossen. Die Strömungsanteile in den betreffenden Durchgängen werden individuell mit Hilfe von Durchgangsparametern so eingestellt, daß sowohl für die gewünschte Leistungsabgabe der Zelle an elektrischer Energie als auch für die gewünschte Wärmeabfuhr gesorgt wird.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine verbesserte elektrochemische Brennstoffzelle zu schaffen, in der die vorgenannte Wärmeregelmethode, welche auf der Eigenwärme des Verfahrensgases beruht, durchgeführt werden kann.

Diese Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale des Patentanspruchs 1 gelöst.

Bevorzugte Ausgestaltungen der Erfindung sind Gegenstand der Unteransprüche.

Die vorgenannten und andere Ziele und Merkmale der Erfindung werden durch die nachfolgende detaillier-

te Beschreibung und die Zeichnungen, in welchen gleiche Bezugszahlen jeweils gleiche Teile bezeichnen, näher erläutert. Von den Zeichnungen zeigt

Fig. 1 einen Querschnitt nach I-I von Fig. 2 durch eine beispielhafte Ausführungsform einer elektrochemischen Zelle;

Fig. 2 eine Seitenansicht der Zelle von Fig. 1;

Fig. 3 eine perspektivische Ansicht der in der Zelle von Fig. 1 und 2 verwendeten Trennplatte;

Fig. 4 und 5 perspektivische Ansichten von bipolaren Trennplatten;

Fig. 6 einen Querschnitt durch einen Brennstoffzellen-Stapel; und

Fig. 7(a)-(d) schematische Ansichten anderer Ausführungsformen der Trennplatten.

Gemäß Fig. 1 und 2 enthält die Brennstoffzelle 10 Elektroden (Anode und Kathode) 12 und 14 vom Gasdiffusionstyp und eine dazwischen befindliche Elektrolytmatrix oder -schicht 16. Eine Trennplatte 18 ist so konstruiert, daß sie Strömungswege 18a für die Zufuhr von Verfahrensgas zur Anode 12 aufweist, wobei sämtliche Strömungswege in Fließverbindung mit dem Elektrolyt stehen. Eine Trennplatte 20 vom unipolaren Typ weist erste Strömungswege 20a für die Zufuhr von Verfahrensgas zur Kathode 14 auf. Aufgrund des Gasdiffusionscharakters der Elektroden 12 und 14 stehen die Strömungswege 18a und 20a mit dem Elektrolyt in Verbindung.

Die zweiten Strömungswege 20b der Trennplatte 20 kommen nicht in Berührung mit der Kathode 14, da die Begrenzungswände 20c, 20d und 20e der Strömungswege im wesentlichen gasundurchlässig sind, während die Wand 20d die Elektrode 14 berührt. Die Platte 20f ist angrenzend an die Strömungswege 20b angeordnet, um diese zu schließen. Demgemäß sind die Strömungswege 20b gegenüber dem Elektrolyt 16 isoliert, und das den Strömungswegen 20b zugeführte Verfahrensgas kann durch die Brennstoffzelle zur Wärmeregulierung geleitet werden, ohne daß es zum Elektrolytverlust oder einer Blockierung beiträgt. Im Gegensatz dazu ergeben die durch die Strömungswege 18a und 20a geleiteten Verfahrensgase ein Abgas, welches zwangsläufig teilweise mit Elektrolytdampf gesättigt ist. Bei der dargestellten Ausführungsform sind die Strömungswege 20a und 20b alternierend nacheinander in einer gemeinsamen Ebene angeordnet, wenn man über die Oberfläche der Elektrode 14 vorschreitet, welche an die Spitzenbereiche 20d der vom Elektrolyt isolierten Strömungswege 20b angrenzt.

Gemäß der obengenannten DE-OS 29 27 656 werden unipolare Trennplatten (wie die Platte 18) verwendet, welche an jede der Zellelektroden einer Brennstoffzelle angrenzen. Das durch die vom Elektrolyt isolierten Strömungswege zu leitende ergänzende Verfahrensgas für die Wärmeregulierung strömt durch Leitungen weiterer Platten, welche durch die unipolaren Trennplatten im Abstand von den Elektroden gehalten werden. Bei der dort speziell offenbarten Ausführungsform werden solche leitungsbegrenzenden weiteren Platten in einer Zelle innerhalb eines Stapels aus aufeinanderfolgenden Zellen angewendet. Da die Wärmeabfuhr somit durch die Eigenwärme des ergänzenden Verfahrensgases an in gewissem Abstand voneinander befindlichen Stellen beeinflusst wird, besteht die Möglichkeit, daß Wärmegradienten in beträchtlichem Ausmaß auftreten. Dieser Nachteil wird durch die hier beschriebenen Arbeitsweisen und Vorrichtungen überwunden; bei diesen sind die

Wärmegradienten vermindert, da nach Bedarf eine Wärmeabfuhr von der hitzerzeugenden Oberfläche jeder Zelle erfolgen kann.

Die unipolare Ausführungsform der Trennplatte 20 ist leicht herstellbar, indem man ein zusammenhängendes Blatt- bzw. Folienmaterial verwendet und dieses Material wellt, wobei Kanäle entstehen, welche die jeweiligen verschiedenen Strömungswege begrenzen. Obwohl die Strömungswege in den Fig. 1 bis 3 symmetrisch dargestellt sind, können sie so vorgebildet werden, daß sie verschiedene Querschnittsflächen aufweisen, welche auf das zur Erzielung der gewünschten Wärmeabfuhr und elektrischen Leistungsabgabe erforderliche Verhältnis der durch die Strömungskanäle verlaufenden Strömungen abgestimmt ist. Typischerweise ist der Strom durch die vom Elektrolyt isolierten Strömungswege fünfmal so groß wie der Strom durch die mit dem Elektrolyt in Verbindung stehenden Strömungswege. Die gewünschten Strömungen in den betreffenden Strömungswegen können z. B. dadurch erzielt werden, daß man die Größe und geometrischen Dimensionen der Strömungswege variiert und/oder in einem Strömungsweg oder in beiden Strömungswegen fixierte oder variabel einstellbare Verengungen anbringt. Wie in Fig. 3 beispielhaft dargestellt ist, kann man im Strömungsweg 20a eine Teil-Endwand 20g ausbilden oder darin ein blockartiges Hindernis 22 anbringen.

Die Fig. 4 und 5 veranschaulichen bipolare Platten. Bei beiden derartigen Platten verlaufen längliche Strömungswege in der Längsrichtung mit den entgegengesetzten Oberflächen der Platten. Gemäß Fig. 4 beinhaltet die bipolare Platte 24 ein gewelltes Blatt- bzw. Folienelement 26, das oberhalb der Platte 28 angeordnet ist, welche die Strömungswege 28a für das Verfahrensgas begrenzt, und die genannten Strömungs-

wege öffnen sich in die untere Plattenoberfläche. Das Element 26 weist erste Strömungswege 26a (mit dem Elektrolyt in Verbindung stehend), die sich in die obere Plattenoberfläche öffnen, und zweite Strömungswege 26b (vom Elektrolyt isoliert), die parallel zu den ersten Strömungswegen 26a verlaufen, auf. Eine solche der Fig. 4 entsprechende Platte ist beim Stapelansatz in dem in Fig. 6 dargestellten Brennstoffzellenstapel gezeigt.

Bei der bipolaren Platte 30 von Fig. 5 stützt die rückseitige Trägerplatte 32 die gewellten Blatt- bzw. Folienelemente 34 und 36 und schließt deren vom Elektrolyt isolierte Strömungswege 34b und 36b. Die kreuzweise verlaufenden, mit dem Elektrolyt in Verbindung stehenden Strömungswege 34a und 36a versorgen die an sie angrenzenden (nicht gezeigten) Elektroden mit Verfahrensgas.

Die Erfindung kann generell in jeder beliebigen, mit einem Reaktantengas arbeitenden elektrochemischen Zelle verwirklicht werden. Besonders gut eignet sich die Erfindung zur Anwendung in Brennstoffzellen, wie Phosphorsäure-Brennstoffzellen, mit denen das auch zur Wärmeregulierung verwendete Verfahrensgas das Kathodengas und/oder ein wasserstoffreiches Anodengas ist, und in mit geschmolzenem Carbonat arbeitenden Brennstoffzellen, in denen das auch zur Wärmeregulierung verwendete Verfahrensgas ein Luft/Kohlendioxid-Kathodengasgemisch und/oder ein wasserstoffreiches Anodengasgemisch ist.

Die vorstehend beschriebenen Ausführungsformen können in verschiedener Weise abgewandelt werden. So kann man die geometrischen Dimensionen der Durchgänge stark variieren, wie anhand der in den Fig. 7(a)-(d) schematisch dargestellten, gewellten Blatt- bzw. Folienelemente 38 bis 44 gezeigt wird.

Hierzu 3 Blatt Zeichnungen

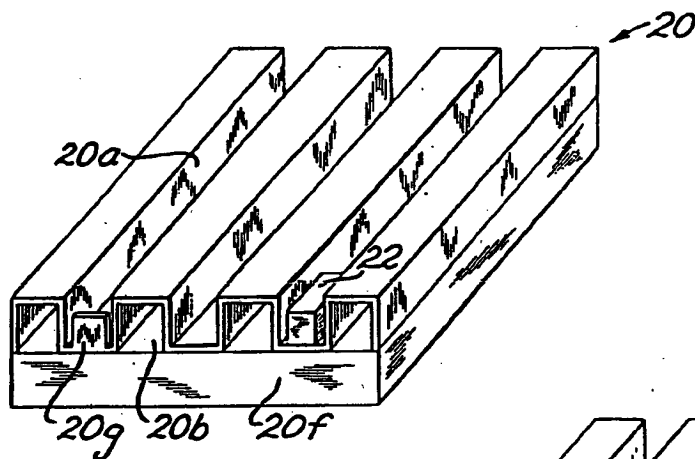


FIG. 3

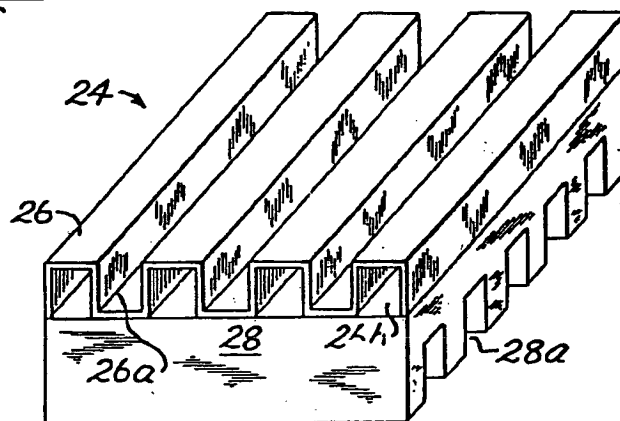


FIG. 4

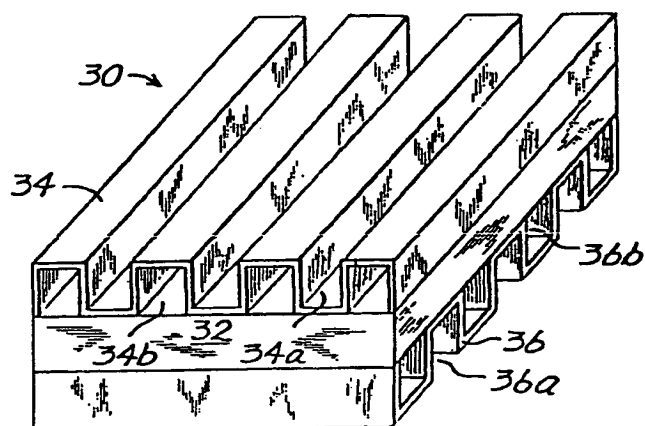
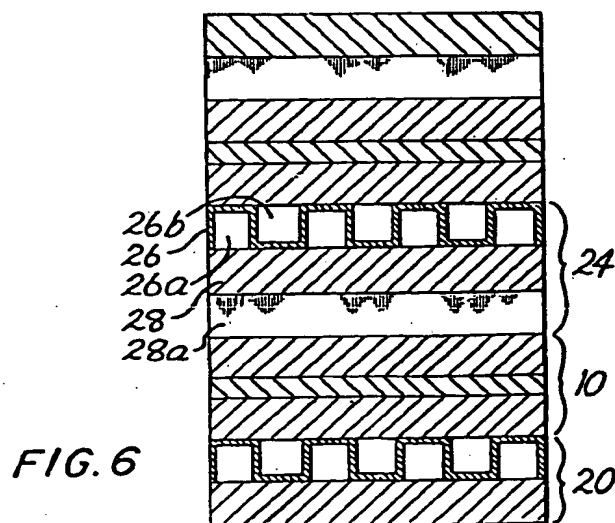
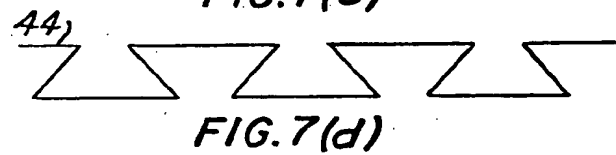
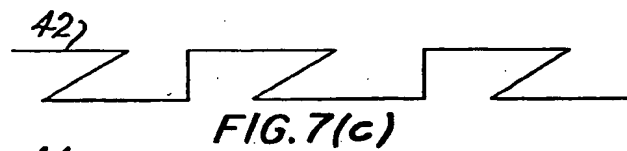
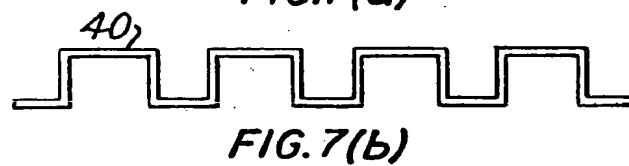
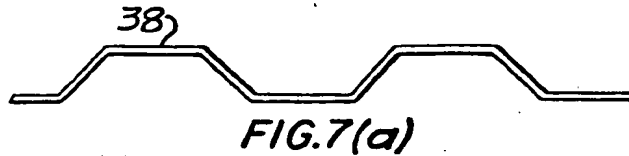


FIG. 5



THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)